

การศึกษากระบวนการโซล-เจล เพื่อผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ชนิด เซรามิก

นางสาว สุพิชชา คชเสณี



วิทยานิพนธ์นี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาคตามหลักสูตรปริญญาวิศวกรรมศาสตรมหาบัณฑิต

ภาควิชาวิศวกรรมเทคโนโลยี

บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

พ.ศ. 2525

ISBN-974-561-218-9

A STUDY OF SOL-GEL PROCESS FOR PRODUCING
CERAMIC URANIUM FUELS

Miss Supitcha Kochasenee




A Thesis Submitted in Partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of Master of Engineering
Department of Nuclear Technology
Graduate School
Chulalongkorn University

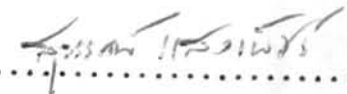
ห้องสมุดคณะวิศวกรรมศาสตร์
มหาวิทยาลัยจุฬาลงกรณ์


หัวข้อวิทยานิพนธ์ การศึกษากระบวนการโซล-เจล เพื่อผลิตเมมเบรนเชื้อเพลิง
ยูเรเนียม ชนิด เซรามิก
โดย นางสาว สุพิชชา คชเสนี
ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี
อาจารย์ที่ปรึกษา อาจารย์ ชยากริด ศิริอุปถัมภ์


บัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย อนุมัติให้บัณฑิตวิทยาลัยนี้เป็นส่วนหนึ่งของการศึกษาตามหลักสูตรปริญญาโทบัณฑิต


.....  คณบดี บัณฑิตวิทยาลัย
(รองศาสตราจารย์ ดร. สุประดิษฐ์ บุญนาค)

คณะกรรมการสอบวิทยานิพนธ์

.....  ประธานกรรมการ
(ศาสตราจารย์ สุวรรณ แสงเพชร)

.....  กรรมการ
(ศาสตราจารย์ ดร. เพ็จ สิทธิสุนทร)

.....  กรรมการ
(อาจารย์ ศิริวัฒนา ไทรสมบุญ)

.....  กรรมการ
(อาจารย์ ชยากริด ศิริอุปถัมภ์)

ลิขสิทธิ์ของบัณฑิตวิทยาลัย จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย

หัวข้อวิทยานิพนธ์ การศึกษากระบวนการโซล-เจล เพื่อผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ชนิด
 เซรามิก

ชื่อนิสิต นางสาว สุพิชชา คชเสณี

ชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา อาจารย์ ชยากริต ศิริอุบลวัฒน์

ภาควิชา นิวเคลียร์เทคโนโลยี

ปีการศึกษา 2524

บทคัดย่อ

ได้ศึกษาเทคนิคต่าง ๆ ของกระบวนการโซล-เจลเพื่อผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียม ชนิด เซรามิก และได้พัฒนากระบวนการโซล-เจล เพื่อผลิตเม็ดเชื้อเพลิงยูเรเนียมไดออกไซด์ขึ้น โดยใช้เทคนิคแบบเขย่าโซลที่เสถียรในหลอดสุญญากาศร่วมกับการทำวอเตอร์ เอกซ์เทรคชัน เจลเลชัน การทดลอง เน้นถึงการหาเงื่อนไขต่าง ๆ เพื่อให้ได้โซลที่เสถียรความเข้มข้นพอเหมาะให้ได้ไมโครสเฟียร์ของยูเร-เนียม ไดออกไซด์ขนาดเล็กเสถียรกัน การลดปริมาณคาร์บอนในผลผลิตให้มีค่าต่ำและการเผาประสานที่ให้ ผลผลิตสูงและมีความหนาแน่นสูง จากการทดลองโดยใช้โซลที่เสถียรความเข้มข้น 0.8-1.2 โมล ของยูเรเนียมคลอไรด์ ผ่านหลอดสุญญากาศเส้นผ่าศูนย์กลางภายใน 0.70, 0.75, 0.80 มิลลิเมตร และเขย่าให้มีความถี่อยู่ในช่วง 28-35 เฮิรตซ์ ลงในคอลัมน์เส้นผ่าศูนย์กลาง 2.5 เซนติเมตร สูง 7.5 เมตร บรรจุไว้ด้วย 2-เอทิล-1-เฮกซานอล ผสมกับ สแปน-80 ร้อยละ 1.0 โดยให้ความ ร้อนกับคอลัมน์ 4 ช่วงที่ 40°-80° ซ. ผลปรากฏว่า ได้หยดโซลจากหลอดสุญญากาศมีเส้นผ่าศูนย์กลาง อยู่ในช่วง 360-720 ไมโครเมตรเมื่อผ่านคอลัมน์ดังกล่าว ทำให้แห้งด้วยไอน้ำและแกซอาร์กอนที่ 185° ซ. เมื่อเผาประสานในแกซอาร์กอนผสมแก๊สไฮโดรเจนร้อยละ 4 ที่อุณหภูมิ 1150° ซ. แล้ว ปริมาณคาร์บอนจะลดลงต่ำกว่าร้อยละ 0.3 จะมีขนาดอยู่ในช่วง 100-220 ไมโครเมตร ปริมาณ ร้อยละสูงสุดของขนาดอยู่ที่ขนาด 150 ไมโครเมตร ความหนาแน่นของไมโครสเฟียร์ที่ได้เป็นผล ผลิตอยู่ในช่วงร้อยละ 80-90 ของความหนาแน่นตามทฤษฎี

Thesis Title A Study of Sol-Gel Process for Producing Ceramic
 Uranium Fuels

Name Miss Supitcha Kochasenee

Thesis Advisor Mr. Chyagrit Siri-Upathum

Department Nuclear Technology

Academic Year 1981

Abstract

Studies of various techniques for Sol-gel process to produce ceramic uranium fuels were made and a development of sol dispersion by vibrating nozzle and water extraction gelation method was conducted to produce uranium dioxide microspheres. The experiments were performed with the purposes of obtaining the conditions and details of the process included a suitable stable sol concentration to produce microspheres of the same size with lowest carbon content and the factors influence in sintering of the microspheres. Starting from stable sol of 0.8-1.2 mol U/l passed through a vibrating nozzle of 0.70, 0.75, 0.80 mm. in side diameter which vibrated at the frequency range 28-35 Hz., sol drops size obtained determined to be 360-720 μm . After sol drops fell to 2-ethyl-1-hexanol with 10 % Span-80 in a column of 2.5 cm diameter, 7.5 m high, heated four zones at 40^o-80^oC, the microspheres were collected and dried in steam-argon mixture at 185^oC. Sintering of microspheres was done in 4 % H₂ in argon at 1150^oC. It was found that the carbon content in microspheres was less than 0.3 %. The microspheres obtained were of 100-220 μm in diameter with maximum yield at 150 μm and density in the range 80-90 % of theoretical density

กิติกรรมประกาศ

ข้าพเจ้าใคร่ขอขอบพระคุณ ท่านศาสตราจารย์ สุวรรณ แสงเพ็ชร ที่ให้ความสนับสนุนในงานวิจัยเรื่องนี้ และขอขอบพระคุณ ท่านอาจารย์ ชยากริต ศิริอุปถัมภ์ ซึ่งเป็นผู้ให้ความช่วยเหลือทั้งด้านแนวความคิดตลอดจนคำแนะนำต่าง ๆ ในการทำการวิจัยตั้งแต่ต้นจนแล้วเสร็จสมบูรณ์โดยตลอดเวลา อนึ่ง ข้าพเจ้าขอขอบพระคุณ อาจารย์ วีระชัย บัญชรเทวกุล อาจารย์ นเรศร์ จันทน์ขาว อาจารย์ ศิริวัฒนา ไทรสมบูรณ์ ที่แนะนำช่วยเหลือโดยตลอด และขอขอบพระคุณ อาจารย์ สุวิทย์ ปุณณชัยยะ และคุณไพบุลย์ นวลนิล ที่ให้ความช่วยเหลือในด้านเครื่องมือไฟฟ้าและอิเล็กทรอนิกส์ของงานวิจัยซึ่งสำคัญต่องานมากและขอขอบคุณเจ้าหน้าที่ภาควิชาโลหการที่ให้ความช่วยในเรื่องเคาวิเคราะห์คาร์บอน และขอขอบคุณ คุณจินตนา สมานทอง ที่ให้ความช่วยเหลือในเรื่องการนับจำนวนไมโครสเฟียร์ ขอขอบคุณบัณฑิตวิทยาลัยที่ให้ทุนอุดหนุนการวิจัยนี้จนเป็นผลสำเร็จด้วยดี

สารบัญ

| | หน้า |
|--|------|
| บทคัดย่อ (ไทย) | ง |
| บทคัดย่อ (อังกฤษ) | จ |
| กิตติกรรมประกาศ | ฉ |
| รายการรูปประกอบ | ฎ |
| รายการตารางประกอบ | ฏ |
| บทที่ | |
| 1. บทนำ | 1 |
| 1.1 ความเป็นมาของปัญหา | 1 |
| 1.2 ความเป็นมาของกระบวนการโซล-เจล | 2 |
| 1.3 วัตถุประสงค์ของการศึกษา | 2 |
| 1.4 ขอบข่ายของการศึกษา | 3 |
| 1.5 การดำเนินการวิจัย | 3 |
| 1.6 ประโยชน์ที่คาดว่าจะได้รับจากการวิจัย | 4 |
| 2. การศึกษาทฤษฎีเบื้องต้น | 5 |
| 2.1 เซรามิค | 5 |
| 2.2 กระบวนการโซล-เจล (Sol-Gel Process) | 9 |
| 2.2.1 การเตรียมเชื้อเพลิงชนิดเซรามิคสเฟียร์ โดยกระบวนการ เจล (Preparation of Ceramic fuel spheres by gel process | 9 |
| 2.2.1.1 วอเคอร์ เอกซเทรคชั่น เจลเช็น | 10 |
| 2.2.1.2 เอกซเทอร์นัล เคมีคัล เจลเช็น | 12 |
| 2.2.1.3 อินเทอร์นัล เคมีคัล เจลเช็น | 15 |

หน้า

| | | |
|---------|--|----|
| 2.2.2 | การทำให้เกิดหยด | 18 |
| 2.2.2.1 | กลไกการเกิดหยดของโซลโดยน้ำหนักของมันเอง | 18 |
| 2.2.2.2 | การแตกเป็นหยดของโซลในลักษณะลารมีนา ... | 20 |
| 2.2.2.3 | การแตกเป็นหยดของลำโซลในลักษณะเทอร์ บูลนต์ด้วยหัวฉีดแบบ พู-ฟลูอิด นอสส์ล | 21 |
| 2.2.3 | การทำให้แห้งและการเผาไหมโครสเฟียร์ | 27 |
| 3. | วอเตอร์ เอกซเทรคชัน เจล | 28 |
| 3.1 | การเตรียมโซลในกระบวนการวอเตอร์ เอกซเทรคชัน เจลขึ้น ... | 28 |
| 3.2 | การเกิดเจล | |
| 3.2.1 | การเลือกตัวทำละลายและเซอร์แฟคแตนท์ | 37 |
| 3.2.2 | การควบคุมองค์ประกอบของแอลกอฮอล์ | 37 |
| 3.2.3 | ขนาดของไมโครสเฟียร์ที่ได้จากวิธีวอเตอร์เอกซเทรคชัน .. | 44 |
| 3.3 | การทำให้แห้งและการเผา | 47 |
| 4. | อุปกรณ์และการดำเนินการวิจัย | 53 |
| 4.1 | อุปกรณ์ที่ใช้ในการวิจัย | 53 |
| 4.2 | สารเคมี | 53 |
| 4.3 | วิธีการดำเนินการวิจัย | 54 |
| 4.4 | การวิเคราะห์หาปริมาณคาร์บอนในไมโครสเฟียร์ | 64 |
| 4.5 | การวิเคราะห์หาความหนาแน่นของไมโครสเฟียร์ | 65 |
| 4.6 | การวิเคราะห์หาความเข้มข้นของยูเรเนียมในโซล | 66 |
| 4.7 | การวิเคราะห์หาเส้นผ่าศูนย์กลางของหยดโซล | 70 |
| 5. | ผลการทดลอง | 71 |
| 6. | สรุปผลการวิจัยและข้อ เสนอแนะ | 84 |
| 6.1 | ผลในขั้นการเตรียมโซล | 84 |
| 6.2 | ผลจากการทำให้เกิดหยด | 85 |

| | หน้า |
|--|------|
| 6.3 ผลของการทำให้แห้ง | 85 |
| 6.4 ผลการวิเคราะห์หาความหนาแน่นของ UO_2 ไมโครสเฟียร์ | 86 |
| 6.5 ผลการวิเคราะห์หาขนาดเส้นผ่าศูนย์กลางของหยดซิล | 86 |
| 6.6 ข้อเสนอแนะ | 87 |
| เอกสารอ้างอิง | 89 |
| ภาคผนวก | 93 |

รายการรูปประกอบ

| รูปที่ | หน้า |
|---|------|
| 2.1 คุณสมบัติของยูเรเนียม เมื่อได้รับความร้อน | 7 |
| 2.2 ยูนิท เซลของยูเรเนียมไดออกไซด์ | 7 |
| 2.3 การเปรียบเทียบขั้นตอนการทำของกระบวนการโซล-เจล และกระบวนการ เพลเลท | 8 |
| 2.4 แผนผังของการเตรียมยูเรเนียมไดออกไซด์ ไมโครสเฟียร์ ด้วยกระบวนการ วอเคอร์ เอกซ์เทรคชัน เจเลชัน | 11 |
| 2.5 เครื่องมือของ SNAM ที่ใช้ในการเกิดหยด | 13 |
| 2.6 แผนผังขั้นตอนกระบวนการ เอกซ์เทรคชัน เคมีคัล เจเลชัน ของ SNAM .. | 14 |
| 2.7 แผนผังขั้นตอนกระบวนการ อินเทรคชัน เคมีคัล เจเลชัน โดย KEMA ... | |
| 2.8 เครื่องมือต่าง ๆ ที่ใช้ในการเกิดหยดในลักษณะลาร์มินาร์ | 22 |
| 2.9 โครงสร้างของรูพรุน (pore) ที่อยู่ระหว่างเกรน (grain) | 28 |
| 3.1 แผนผังการเตรียมยูเรเนียมไดออกไซด์โซลที่ใช้ในห้องปฏิบัติการ (ก) และ ที่ใช้ในอุตสาหกรรม (ข) | 32 |
| 3.2 ภาพขณะที่ใช้ในปฏิกิริยารัดกั้นในอุตสาหกรรม | |
| 3.3 สัดส่วนของคอลัมน์และหัวฉีด พูลลูอิด นอสส์ล | 35 |
| 3.4 การแตกของยูเรเนียมไดออกไซด์ไมโครสเฟียร์เจล | 38 |
| 3.5 ชนิดของการบิดเสียรูป (distortion) ของไมโครสเฟียร์ | 38 |
| 3.6 คอลัมน์และระบบการนำเอาสารละลายอินทรีย์กลับมาใช้ใหม่ | 42 |
| 3.7 เครื่องมือการทำให้แห้ง | 48 |
| 3.8 รูปความสัมพันธ์ของอุณหภูมิกับน้ำหนักที่สูญเสียสะสมและความแตกต่างของ น้ำหนักที่สูญเสียในระหว่างการทำให้แห้ง | 48 |
| 3.9 รูปความสัมพันธ์ของอุณหภูมิกับน้ำหนักที่สูญเสียสะสมและความแตกต่างของ น้ำหนักที่สูญเสียในระหว่างทำการเผา | 51 |

| รูปที่ | หน้า |
|---|------|
| 4.1 แสดงการเตรียม ยูเรเนียมไนเตรท | 55 |
| 4.2 การเตรียมยูเรเนียมไฮดรอกไซด์ที่ pH 7.50 | 56 |
| 4.3 แสดงการเตรียมไซล | 58 |
| 4.4 การใช้เครื่องสั่นช่วยในการเกิดหยด | 59 |
| 4.5 เครื่องมืออิเล็กทรอนิกส์ในการทำให้เกิดการสั่น | 60 |
| 4.6 คอลัมน์ที่ใช้ในการทำให้เกิดหยดและการให้ความร้อนโดยใช้ลวดควายร้อน ไฟฟ้าพันที่คอลัมน์ | 60 |
| 4.7 สัดส่วนของคอลัมน์ที่ใช้ในงานวิจัย | 61 |
| 4.8 การทำให้แห้ง (drying) และลดปริมาณคาร์บอน | 62 |
| 4.9 เตาที่ใช้เผาประสานไมโครสเฟียร์ | 63 |
| 5.1 แสดงการเกิดหยด | 78 |
| 5.2 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 300 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 6) | 79 |
| 5.3 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 300 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 5) | 79 |
| 5.4 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 200 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 6) | 80 |
| 5.5 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 200 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 5) | 80 |
| 5.6 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 150 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 6) | 81 |
| 5.7 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 150 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 5) | 81 |
| 5.8 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 100 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 6) | 82 |
| 5.9 ภาพถ่ายไมโครสเฟียร์ขนาด 100 ไมโครเมตร (ตัวอย่างที่ 5) | 82 |
| 5.10 การจับกลุ่มของ UO_2 ไมโครสเฟียร์ | 83 |
| 5.11 การแตกของ UO_2 ไมโครสเฟียร์ เนื่องจากอัตราการเปลี่ยนแปลงของ อุณหภูมิเร็วเกินไปในระหว่างการเผาที่อุณหภูมิสูง | 83 |

รายการตารางประกอบ

| ตารางที่ | หน้า |
|--|------|
| 2.1 คุณสมบัติของวัสดุ เซรามิก | 6 |
| 2.2 คุณสมบัติของสารประกอบยูเรเนียม | 6 |
| 2.3 เครื่องมือที่ใช้ในการทำให้เกิดหทัยโซลที่ให้ขนาดต่างกันตามคุณสมบัติ ของโซล | 26 |
| 3.1 คุณสมบัติของโซลที่มีผลต่อการ เกิด เจลสเฟียร์ | 36 |
| 3.2 แสดงความ เข้มข้น เร็วต้นของ เซอร์แพค เคนท์และปริมาณเซอร์แพค เคนท์ ที่เดิม เมื่อใช้งานในระยะเวลาต่าง ๆ กัน | 39 |
| 3.3 ผลของการ เปลี่ยนแปลงองค์ประกอบของแอลกอฮอล์ | 40 |
| 3.4 การแก้ไขปัญหาที่พบในชั้น เจ เลชัน | 41 |
| 3.5 แสดงส่วนประกอบของไมโครสเฟียร์หลังจากทำให้แห้งที่สภาวะต่าง ๆ กัน | 49 |
| 3.6 แสดงสภาวะและผลของการเผาของไมโครสเฟียร์ | 52 |
| 5.1 แสดงจำนวนและคาร์บอนขนาด เส้นผ่าศูนย์กลางที่กลม แดก เป็นผงของ UO_2 ไมโครสเฟียร์ | 71 |
| 5.2 ค่าความหนาแน่นของ UO_2 ไมโครสเฟียร์ โดยการแทนที่ในน้ำ ... | 72 |
| 5.3 สภาวะการทำให้แห้งของไมโครสเฟียร์และคาร์บอนหลัง จากทำให้แห้ง | 73 |
| 5.4 สภาวะการเผาที่อุณหภูมิสูง คาร์บอนและค่าความหนาแน่น ของ UO_2 ไมโครสเฟียร์เมื่อทำการเผาแล้ว | 74 |
| 5.5 ขนาดของ เส้นผ่าศูนย์กลางของหทัยโซลและความ เข้มข้นของโซลที่ใช้ใน การทำให้เกิดหทัย | 75 |
| 5.6 แสดงคาร์บอนของปริมาณคาร์บอนที่อ่านได้และทำการแก้ไขแล้ว | 76 |
| 5.6 (ต่อ) แสดงคาร์บอนของปริมาณคาร์บอนที่อ่านได้และทำการแก้ไขแล้ว | 77 |

| | หน้า |
|--|------|
| รูป ก-1 แผนผังการเตรียม UO_2 สเฟียร์ ซึ่งศึกษาในประเทศญี่ปุ่น | 95 |
| รูป ก-2 แผนผังการเตรียมยูเรเนียมและพลูโตเนียมไอโซล ซึ่งศึกษาในประเทศอิตาลี | 96 |
| รูป ก-3 PuO_2 ไมโครสเฟียร์ขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 15 ไมโครเมตรและมีความหนาแน่นคิดเป็นร้อยละ มากกว่า 95 ของความหนาแน่นตามทฤษฎี | 97 |
| รูป ก-4 UO_2 ไมโครสเฟียร์ขนาด 75 ไมโครเมตร และ ThO_2 ไมโครสเฟียร์ ขนาด 350 ไมโครเมตร ซึ่งเป็นผลจากการศึกษาของ SNAM | 98 |
| รูป ก-5 ไมโครสเฟียร์ ซึ่งได้จากการศึกษาในประเทศอังกฤษ ใช้เป็นเชื้อเพลิงสำหรับ Breeder Reactor | 99 |
| รูป ก-6 ไมโครสเฟียร์ ซึ่งได้จากกระบวนการ อินเทอร์นัล เคมีคัล เจเลชัน | 100 |